

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

see back

CLIPPEDIMAGE= JP401213910A  
PAT-NO: JP401213910A  
DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 01213910 A  
TITLE: ALUMINA CERAMIC COMPOSITION

PUBN-DATE: August 28, 1989

INVENTOR-INFORMATION:

NAME

ANDO, MIGIWA

ITO, YUKIAKI

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME

NGK SPARK PLUG CO LTD

COUNTRY

N/A

APPL-NO: JP63038406

APPL-DATE: February 19, 1988

INT-CL (IPC): H01B003/12; C04B035/10

US-CL-CURRENT: 501/127, 501/153

ABSTRACT:

PURPOSE: To obtain alumina ceramic compositions having a low loss at high-frequency, by specifying the relationship between the contents of Si and Mg both of which are contained most frequency than any other impurity in alumina as a principle component and also by specifying the relationship among components of other metals such as Fe, Cr, Mn, Na, K, Ca and alkali.

CONSTITUTION: Contents of impurities contained in a principal component alumina are specified at a ppm unit on an elemental basis as follows: ~~Si~~ should be less than 80; ~~Mg~~ less than 60; the ratio of Si/Mg should be in a range of 1-5; each element of other metal and ~~alkali components~~ should be less than ~~60~~ and their total contents, less than 70. This specification enables  $\tan\delta$  to be kept

less at a 10<SP>-5</SP> level and also lowers the calcination temperature of alumina ceramics. This can yield alumina ceramic compositions having a low loss at high-frequency.

COPYRIGHT: (C)1989, JPO&Japio

## ⑫ 公開特許公報(A) 平1-213910

⑤Int. Cl.<sup>4</sup>H 01 B 3/12  
C 04 B 35/10

識別記号

3 3 7

庁内整理番号

6969-5G  
D-7412-4G

⑬公開 平成1年(1989)8月28日

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全5頁)

⑭発明の名称 アルミナ磁器組成物

⑯特 願 昭63-38406

⑰出 願 昭63(1988)2月19日

⑱発 明 者 安 藤 汀 愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号 日本特殊陶業株式会社内

⑲発 明 者 伊 藤 幸 昭 愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号 日本特殊陶業株式会社内

⑳出 願 人 日本特殊陶業株式会社 愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号

㉑復代理人 弁理士 藤木 三幸

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

アルミナ磁器組成物

## 2. 特許請求の範囲

不純物の含有量が元素基準のppm単位でSi 80以下、Mg 60以下でSi/Mgが1~5、かつ他の金属、アルカリ成分等が一元素60以下、総量70以下であることを特徴とするtanδが10<sup>-3</sup>レベルで10以下の高周波低損失性のアルミナ磁器組成物。

## 3. 発明の詳細な説明

## 「産業上の利用分野」

本発明は通信機用のMIC基板、MICパッケージ、マイクロ波コンデンサ、更には高エネルギー粒子加速装置のマイクロ波透過窓等に適した高周波低損失性のアルミナ磁器組成物に関する。

## 「発明が解決しようとする問題点」

満足すべき上記の高周波低損失性のアルミナ磁器組成物としてtanδが10<sup>-3</sup>レベルで10以

下の小さな値は、純度が99.999%程度の高純度アルミナ磁器によって得られるものとされていたが、実際はアルミナ純度が上記の99.999%程度の高純度アルミナを焼結しても必ずしも所望の高周波低損失性は得られず、10<sup>-3</sup>レベルのtanδが確実に10以下を呈するアルミナ磁器が強く要望されていた。

## 「問題点を解決するための手段」

主成分アルミナに含まれる不純物元素の内、最も広く含まれるSiとMgの関係、及びこれら両者とFe, Cr, Mn, Na, K, Ca等の他の金属、アルカリ成分との関係に着目して実験の結果、ppm単位でSi 80以下、Mg 60以下でSi/Mg 1~5、上記のSiとMg以外の金属、アルカリ成分が一元素60以下、それらの総量が70以下の場合において、tanδが10<sup>-3</sup>レベルで10以下の高周波低損失性のアルミナ磁器が得られることを見出した。

## 「作用」

上記不純物元素が限界を外れた場合はtanδ

が目標とする  $10^{-3}$  レベルで 10 以下に抑えることができない。

「実施例」

(1) 平均粒径  $0.25\mu$  で、不純物として元素基準の ppm 単位で、

Si Mg Na K Ca Fe Cr Mn  
3 0.5 2 <1 <1 4 <1 <1

を含む純度 99.999% と称される市販の  $Al_2O_3$  各 200g 及び  $Al_2O_3$  200g に対し上記不純物が次表に示す含有率となるよう、次の化合物

Si … コロイダルシリカ  $SiO_2$  分として 99.9%

Mg … 乳酸マグネシウム 試薬特級  
Na … 乳酸ナトリウム 試薬特級  
K … 乳酸カリウム 試薬特級  
Ca … 乳酸カルシウム 試薬特級  
Fe … 乳酸鉄 試薬特級  
Cr … 酢酸クロム 試薬特級  
Mn … 乳酸マンガン 試薬特級

の内、Si と Mg を第 1 の不純物として添加した粉末原料を純水 370ml、ポリビニルアルコール 1.5g とともに、内容積 1000ml のボールミル、ゴムライニング球石 400g によって 5 時間の混合を行なった。

次に 1.5g のポリビニルアルコールを結合剤として加え、1 時間の混合、溶解を行なった。

得られた泥漿を 250 メッシュの篩に通した後、冷凍乾燥機で 15 時間の乾燥によって粉末化し、ナイロン製 42 メッシュの篩を通して製粒した。

この製粒した粉末を  $1500\text{kg/cm}^2$  の金型プレスによって  $8\text{mm}\phi \times 8\text{mm}$  に成形、焼成した後、 $6\text{mm}\phi \times 6\text{mm}$  に研磨加工した 13 種の試料について高周波誘電特性等を測定しその結果を次の第 1 表に示す。

第 1 表

試料 No	不 純 物 ppm											特 性 値			焼成温度 ℃	摘 要		
	第 1				第 2							合計 (参考)	ε 15GHz	tanδ <sub>ε</sub> (×10 <sup>-2</sup> ) 15GHz			比重	
	Si	Mg	小計	Si/Mg	Na	K	Ca	Fe	Cr	Mn	小計							
1	3	0.5	3.5	6	2	<1	<1	4	<1	<1	<10	<13.5	9.86	12	3.98	1630	範 囲 内	(不純物無添加) Si/Mg
2	+	+ 8.5 4	7	0.75								<17	9.87	17	3.93	1630		Si/Mg
3	+42 45	+59.5 60	105	•								<115	9.88	15	3.93	1610		同上
4	+77 80	+120 125	92.5	6.4	2	<1	<1	4	<1	<1	<10	<102.5	9.87	13	3.94	1630		同上
5	+87 90	+44.5 45	135	2								<145	9.88	14	3.93	1610		Si
6	+75 78	+64.5 65	123	1.2								<188	9.87	13	3.95	1630		Mg
7	+42 45	+ 6.5 7	52	6.42								< 62	9.86	13	3.93	1610		Si/Mg
8	+ 0 3	+ 2.5 3	6	1								<16	9.88	4.6	3.94	1610	範 囲 内	
9	+57 60	+59.5 60	120	1								<180	9.87	4.9	3.95	1600		
10	+77 80	+59.5 60	140	1.33	2	<1	<1	4	<1	<1	<10	<150	9.86	5.4	3.94	1600		
11	+77 80	+15.5 16	96	5								<106	9.88	3.7	3.95	1620		
12	+ 0 3	+ 0.1 0.6	3.6	5								<18.6	9.87	2.5	3.94	1610		
13	+27 45	+14.5 15	60	8								< 70	9.88	1.7	3.95	1610		

第1表に示される通り、不純物を含有するだけに止めて新しくは全く添加せず市販の純度99.999%と称される $Al_2O_3$ をそのまま使用した試料No.1及び第1の不純物のみを添加し、それらのSi, Mg, Si/Mgのいずれかが範囲を外れた試料No.2~7はいずれも $\tan \delta$ が所望の $10^{-5}$ レベルに達しなかったが、Si, Mg, Si/Mgが本発明の範囲の試料No.8~18はいずれも満足すべき成果を得た。

(2) 前例と同様の条件で満足を取めた試料No.8~18の内、Si/MgをNo.18に準じて8に固定し、第2の不純物Na以下をそれぞれ各種の割合で添加して得た試料について高周波誘電特性等を測定した結果を次の第2表に示す。

第 2 表

試料 No.	不 純 物 ppm				特 性 値				焼成温度 ℃	摘 要							
	第 1			合計 (平均)	第 2			ε 15GHz			tan δ × 10 <sup>5</sup> 15GHz	比重					
Si	Mg	小計	Si/Mg		Na	K	Ca		Fe	Cr			Mn	小計			
14	+12 15	+4.5 5	20	8	2	<1	+9 <10	4	<1	<1	<19	<89	9.88	1.6	8.94	1610	範囲内
15					•	•	+59 <60	•	•	•	<69	<89	9.88	9.1	8.95	1600	範囲外 (Ca小計)
16					•	•	+64 <65	•	•	•	<74	<94	9.88	12	8.95	1600	
17					•	•	<1	+11 15	•	•	<21	<41	9.87	1.9	8.94	1620	範囲内
18					•	•	•	+56 <60	•	•	<66	<86	9.88	8.0	8.98	1610	範囲外 (Fe小計)
19					•	•	•	+61 <66	•	•	<71	<91	9.87	14	8.95	1600	
20					•	•	•	4	+9 10	•	<19	<39	9.86	8.0	8.94	1590	範囲内
21					•	•	•	•	+59 60	•	<69	<89	9.87	9.6	8.95	1590	範囲外 (Cr小計)
22					•	•	•	•	+64 65	•	<74	<94	9.88	12	8.95	1590	
23					•	•	•	•	•	+9 10	<19	<39	9.87	2.1	8.94	1600	範囲内
24					•	•	•	•	•	+59 60	<69	<89	9.86	8.8	8.95	1620	範囲外 (Mn小計)
25					•	•	•	•	•	+64 65	<74	<94	9.87	14	8.95	1650	
26									+8 10	•	•	•	<1	<18	<88	9.88	1.9
27					+58 60	•	•	•	•	<68	<88	9.87	9.4	8.95	1600	範囲外 (Na小計)	
28					+68 65	•	•	•	•	<73	<98	9.88	15	8.95	1590		
29					2	+9 <10	•	•	•	<19	<39	9.87	8.3	8.95	1600	範囲内	
30					•	+59 <60	•	•	•	<69	<89	9.87	9.5	8.94	1590	範囲外 (K小計)	
31					•	+64 <65	•	•	•	<74	<94	9.86	12	8.94	1580		
32					+8 10	+9 <10	+6 <10	+9 <10	+9 <10	+9 <10	<60	<80	9.87	8.6	8.95	1600	範囲内
33					+19 20	+12 13	+12 13	+8 12	+12 13	+12 13	<76	<96	9.88	18	8.94	1620	範囲外 (小計)

第2表に示される通り、第1の不純物 Si: Mg を 15 : 5、Si / Mg を範囲内の略々中間値 8 に固定し、第2の不純物 Na, K, Ca, Cr 及び Mn のいずれか 1 種以上の含有量が增大した場合、一元素として 60 ppm 以下、総量が 70 ppm に満たない試料 № 14, 15, 17, 18, 20, 21, 28, 24, 26, 27, 29, 30 及び 32 はいずれも  $\tan \delta$  が  $\times 10^{-3}$  のレベルで本発明の臨界値 10 以下を呈し、それらの内でも一元素のみ 15 ppm 以下として含まれる № 14, 17, 20, 28, 26, 29 はいずれも 8.8 以内に収まり、Na 以下 5 元素全部を 10 ppm または 10 ppm で総量が 60 ppm の № 32 も 8.6 で、特に Ca < 10 の № 14、Na 10 の № 26 及び Fe 15 の № 17 は 1.9 以下の特に優れた値を示したが、上記一元素が 60 ppm を総量として 70 ppm を超える № 16, 19, 22, 25, 28, 31 はいずれも上記の臨界値 10 以上を呈し、またこれら各元素が

13 ppm 以下でも総量が 70 ppm を超える № 38 は臨界値よりも高い値を示した。

(3) 次に Si と Mg からなる第1の不純物の内、Si が範囲内の上限又は上限付近で、対 Mg の比率も 1 ~ 5 の範囲とし、一方第2の不純物 Na 以下を試料 № 32 の値に固定して他は前と同様に製作し、試料について諸特性を測定した結果を第3表に示す。

第 3 表

試料 No	不 純 物 ppm											特 性 値				焼成温度 ℃	摘 要
	第 1				第 2							合計	ε 15GHz	tan δ (×10 <sup>-3</sup> ) 15GHz	比重		
	Si	Mg	小計	Si/Mg	Na	K	Ca	Fe	Cr	Mn	小計						
84	+57 60	+68.5 60	120	1	+ 8 10	+ 9 <10	+ 9 <10	+ 6 <10	+ 9 <10	+ 9 <10	<60	<180	9.88	8.9	3.95	1600	範囲内
35	+77 80	+59.5 60	140	1.33								<200	9.87	9.2	3.94	1610	
86	+77 80	+15.5 16	96	5								<156	9.88	9.0	3.94	1590	

第8表から、第2の不純物Na, K, Ca, Fe, Cr及びMnを上記の通り№82と同様に10 ppm及び<10 ppm、総量を<60 ppmとし、第1の不純物Si, Mgの内、Mgを上限に設定するとともにSi/Mgを下限の1とした試料№84、Si, Mg両者を上限としてSi/Mgが1.83の№85、及び上記№84とは逆にSiを上限に設定するとともにSi/Mgをも上限の5とした試料№86のtanδはいずれも9前後に収まったが、同じSi/Mgが8のSi 15、Mg 5各ppmからなる前第2表の№82には及ばなかった。

#### 「発明の効果」

以上の通り、不純物の含有量が元素基準のppm単位でSi 80以下、Mg 60以下でSi/Mgが1~5、かつ他の金属、アルカリ成分等が元素60以下、総量70以下と特定した本発明のアルミナ磁器組成物は、試料№1の通りAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>純度(含有量)99.999%と称される実質99.99865%の場合においても、第1の不

純物とするSiとMgの関係、Si/Mgが5を超えた場合はtanδが10<sup>-8</sup>レベルで1.2を示すに対して、№85に示される通り、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の純度が上記の試料№1よりも1桁以上も低い99.99%にも達しない99.98% (不純物200 ppm)においてtanδが同じ10<sup>-8</sup>レベルで9.2に収まるだけでなく、焼成温度をも低下させるので経済性、量産性において大きな効果がある。

特許出願人 日本特殊陶業株式会社

代理人 今 井 尚